

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-138067

(43)Date of publication of application : 16.05.2000

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 8/10

(21)Application number : 11-122495

(71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP
TOYO KOHAN CO LTD

(22)Date of filing : 28.04.1999

(72)Inventor : YOSHIMURA TSUNEJI
NONOBE YASUHIRO
YAMANE KEIJI

(30)Priority

Priority number : 10142189
10254625

Priority date : 07.05.1998
24.08.1998

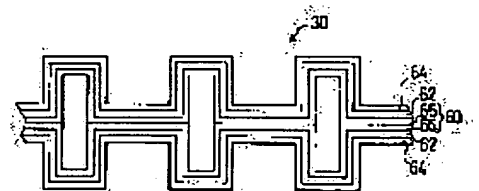
Priority country : JP
JP

(54) FUEL CELL GAS SEPARATOR, FUEL CELL USING IT AND MANUFACTURE OF FUEL CELL GAS SEPARATOR

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide the sufficient corrosion resistance of a metallic gas separator without using an expensive material.

SOLUTION: A base material part 60 made of base material plates 65 and 66 formed out of a stainless steel plate and pasted to each other, has a first coat layer 62 as a tin plated layer on the surface, and the first coat layer 62 is further covered with a second coat layer 64 made of thermal expansion type graphite, thereby adding a sufficient corrosion resistance function to a separator 30 via the second coat layer 64. Also, when the separator 30 is built into a fuel cell 30, contact resistance can be kept low as a gas diffusion electrode adjacent to the separator 30 is made of a carbon material similar to the second coat layer 64. Also, the first coat layer 62 is formed at a plating process after the removal of a passive film on stainless steel plate surface, and the separator 30 becomes free from rising the internal resistance due to the passive film.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

10.02.2006

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the
examiner's decision of rejection or application converted
registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-138067

(P2000-138067A)

(43) 公開日 平成12年5月16日 (2000.5.16)

| | | | |
|---------------------------|------|--------------|-------------|
| (51) Int.Cl. ⁷ | 識別記号 | F I | サーチコード (参考) |
| H 0 1 M 8/02 | | H 0 1 M 8/02 | B 5 H 0 2 6 |
| 8/10 | | 8/10 | |

審査請求 未請求 請求項の数21 O L (全 17 頁)

(21) 出願番号 特願平11-122495

(22) 出願日 平成11年4月28日 (1999.4.28)

(31) 優先権主張番号 特願平10-142189

(32) 優先日 平成10年5月7日 (1998.5.7)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(31) 優先権主張番号 特願平10-254625

(32) 優先日 平成10年8月24日 (1998.8.24)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(71) 出願人 390003193

東洋鋼板株式会社

東京都千代田区霞が関1丁目4番3号

(72) 発明者 吉村 常治

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(74) 代理人 100096817

弁理士 五十嵐 孝雄 (外2名)

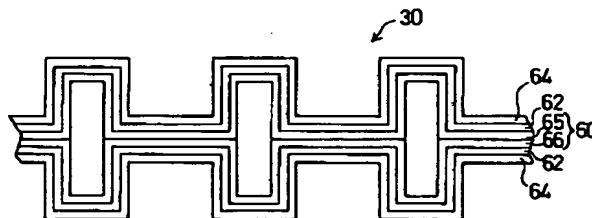
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池用ガスセパレータと該燃料電池用ガスセパレータを用いた燃料電池、並びに燃料電池用ガスセパレータの製造方法

(57) 【要約】

【課題】 金属製ガスセパレータにおいて、高価な材料を用いることなく十分な耐食性を実現する。

【解決手段】 ステンレス板を成形した基材板65、66を貼り合わせて得た基材部60は、その表面に、スズメッキ層である第1コート層62を有し、第1コート層62は、熱膨張黒鉛からなる第2コート層64によってさらに被覆される。このようにセパレータ30は、第2コート層64によって十分な耐食性が付与されている。また、このセパレータ30を燃料電池内に組み込んだときに、セパレータ30と隣接するガス拡散電極は、第2コート層64と同様の炭素材料で構成されているため、接触抵抗を低く抑えることができる。また、第1コート層は、ステンレス表面の不動態被膜を除去した後にメッキ処理によって形成されるため、上記不動態被膜に起因してセパレータ30の内部抵抗が高くなるおそれがない。



(2) 000-138067 (P2000-ch' 橋

【特許請求の範囲】

【請求項1】 燃料電池用ガスセパレータであって、金属製のセパレータ基材と、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する部材と接触する前記セパレータ基材表面の接触面のうち、燃料電池の内部抵抗に関わる接触面上に少なくとも形成され、炭素以外の導電性物質によって構成される第1のコート層と、少なくとも前記第1のコート層が形成された前記接触面上では、前記第1のコート層を被覆するように形成され、炭素材料によって構成される第2のコート層とを備える燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項2】 請求項1記載の燃料電池用ガスセパレータであって、前記セパレータ基材を構成する金属が、導電性を有しない被膜をその表面に形成する性質を有している場合に、前記セパレータ基材の表面のうち、少なくとも前記第1コート層が形成される領域では、前記被膜が取り除かれていることを特徴とする燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項3】 前記第1のコート層は、表面が粗となるように形成された請求項1または2記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項4】 前記セパレータ基材は、少なくとも前記第1のコート層が形成される領域の表面が粗となるように形成された請求項1または2記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項5】 前記第1のコート層を構成する前記導電性物質は、酸化された場合にも導電性を保持する物質である請求項1ないし4いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項6】 前記第1のコート層を構成する前記導電性物質は、卑金属あるいは導電性セラミックである請求項5記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項7】 前記第2のコート層を構成する前記炭素材料は、熱膨張黒鉛を備える請求項1ないし6いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項8】 前記第2のコート層は、前記炭素材料の他に、耐酸性を有する樹脂をバインダとして含むことを特徴とする請求項1ないし7いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項9】 前記樹脂は、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、ウレタン樹脂、フェノール樹脂、フェノールエポキシ樹脂のうちの、少なくとも一種からなる請求項8記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項10】 積層された複数の単セルを備え、水素を含有する燃料ガスと酸素を含有する酸化ガスの供給を受け、電気化学反応によって起電力を得る燃料電池であって、隣接する前記単セル間に設けられ、一方の単セルに供給される前記燃料ガスと、他方の単セルに供給される前記

酸化ガスとが混合するのを防ぐガスセパレータを備え、該ガスセパレータは、請求項1ないし9いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータである燃料電池。

【請求項11】 燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(a) 所定の形状を有する金属製のセパレータ基材を成形する工程と、

(b) 前記(a)工程で得た前記セパレータ基材表面において、少なくとも、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに隣接する部材と接触する接触面のうち、燃料電池の内部抵抗に関わる接触面上に、炭素以外の導電性物質からなる第1のコート層を形成する工程と、

(c) 少なくとも前記第1のコート層が形成された前記接触面上に、前記第1のコート層を被覆するように、炭素材料からなる第2のコート層を形成する工程とを備えることを特徴とする燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項12】 燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(d) 金属製のセパレータ基材を用意する工程と、

(e) 前記(d)工程で得たセパレータ基材表面を被覆するように、炭素以外の導電性物質からなる第1のコート層を形成する工程と、

(f) 前記(e)工程で前記第1のコート層を形成した前記セパレータ基材を、所定の形状を有する金型を用いて成形する工程と、

(g) 前記(f)工程で成形した前記セパレータ基材における前記第1のコート層の表面を被覆するように、炭素材料からなる第2のコート層を形成する工程とを備えることを特徴とする燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項13】 請求項11記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

前記セパレータ基材を構成する金属が、導電性を有しない被膜をその表面に形成する性質を有している場合に、前記(b)工程において、前記第1コート層を形成するのに先立って、前記金属製のセパレータ基材表面に形成された前記被膜を除去する工程をさらに備える燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項14】 請求項12記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

前記セパレータ基材を構成する金属が、導電性を有しない被膜をその表面に形成する性質を有している場合に、前記(e)工程において、前記第1コート層を形成するのに先立って、前記金属製のセパレータ基材表面に形成された前記被膜を除去する工程をさらに備える燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項15】 前記(b)工程において、表面が粗となるように前記第1コート層を形成することを特徴とす

(3) 000-138067 (P2000-ch7 荷係)

る請求項11記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項16】 請求項11記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

前記(a)工程と前記(b)工程との間に、

(h) 前記(a)工程で成形した前記セパレータ基材において、少なくとも前記第1コート層を形成する領域の表面を粗面化する工程をさらに備える燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項17】 前記第1のコート層を構成する前記導電性物質は、酸化された場合にも導電性を保持する物質である請求項11ないし16いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項18】 前記第1のコート層を構成する前記導電性物質は、卑金属あるいは導電性セラミックである請求項17記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項19】 前記第2のコート層を構成する前記炭素材料は、熱膨張黒鉛を備える請求項11ないし18いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項20】 前記第2のコート層は、前記炭素材料の他に、耐酸性を有する樹脂をバインダとして含むことを特徴とする請求項11ないし18いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項21】 前記樹脂は、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、ウレタン樹脂、フェノール樹脂、フェノールエポキシ樹脂のうちの、少なくとも一種からなる請求項20記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料電池用ガスセパレータと該燃料電池用ガスセパレータを用いた燃料電池、並びに燃料電池用ガスセパレータの製造方法に関し、詳しくは、単セルを複数積層して構成する燃料電池において、隣接する単セル間に設けられ、隣接する部材との間で燃料ガス流路および酸化ガス流路を形成すると共に、燃料ガスと酸化ガスを隔てる燃料電池用ガスセパレータと該燃料電池用ガスセパレータを用いた燃料電池、並びに燃料電池用ガスセパレータの製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】燃料電池用ガスセパレータは、複数の単セルが積層された燃料電池スタックを構成する部材であって、十分なガス不透過性を備えることによって、隣合う単セルのそれぞれに供給される燃料ガスおよび酸化ガスが混じり合うのを防いでいる。従来、このような燃料電池用ガスセパレータは、炭素材料あるいは金属材料を用いて製造されてきた。一般に、金属材料は強度に優れているため、炭素材料を用いる場合に比べてより薄いガスセパレータを製造することが可能であり、ガスセパレータを薄くすることによって、燃料電池全体を小型化

することが可能となる。また、金属製のガスセパレータは、金属板をプレスするという簡便な方法によって製造することができるため、製造工程を簡素化・短期化して生産性を向上させ、製造コストの上昇を抑えることができる。

【0003】金属製のガスセパレータを製造する際に用いる金属としては、十分な導電性と強度、および成形性を有する金属の中から適宜選択することができるが、ステンレスやアルミニウムなど、金属材料として特に広く大量に流通している金属を用いることによって、製造コストの大幅な削減が可能となる。このような金属材料を用いる場合には、通常は、燃料電池が動作する環境下での耐食性を十分に確保するための構成が要求される。ガスセパレータの耐食性を向上させるための構成としては、ガスセパレータの表面を、耐食性に優れた金属で被覆する構成が提案されている(例えば、特開平5-182679号公報等)。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、ガスセパレータを被覆して十分な耐食性を付与することができる金属は、白金、金、ロジウム、イリジウムなどの資源的に希少で高価な貴金属であり、このような高価な貴金属を用いることは、燃料電池の製造コストの上昇を引き起こし、燃料電池を広く実用化する上で障害となる。また、耐食性に優れた金属で被覆する際に、メッキなどの方法を用いる場合には、その被覆面に微小な孔が生じるという問題がある。耐食性に優れた被覆面においてこのような微小な孔が存在すると、この孔から徐々に腐食が進行してしまうため、上記した貴金属でガスセパレータを被覆しても、十分な耐食性を確保することは困難であった。被覆面に生じる孔から進行する腐食の影響を許容範囲内にしようとするれば、被覆面をより厚く形成する必要があり、上記した貴金属の使用量の増加につながるため採用し難い。その他、ガスセパレータの表面をニッケルで被覆して耐食性を付与する構成も知られているが(例えば特開平7-282821号公報等)、固体高分子型燃料電池が動作する環境中では、ニッケルによる被覆は、耐食性が充分とはいえない。

【0005】本発明の燃料電池用ガスセパレータと該燃料電池用ガスセパレータを用いた燃料電池、並びに燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、こうした問題を解決し、金属製ガスセパレータにおいて、高価な材料を用いることなく十分な耐食性を実現することを目的となされ、次の構成を採った。

【0006】

【課題を解決するための手段およびその作用・効果】本発明の燃料電池用ガスセパレータは、金属製のセパレータ基材と、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する部材と接触する前記セパレータ基材表面の接触面のうち、燃料電池の内部抵抗に関わる接触

(4) 000-138067 (P2000-CHR67)

面上に少なくとも形成され、炭素以外の導電性物質によって構成される第1のコート層と、少なくとも前記第1のコート層が形成された前記接触面上では、前記第1のコート層を被覆するように形成され、炭素材料によって構成される第2のコート層とを備えることを要旨とする。

【0007】本発明の第1の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、(a)所定の形状を有する金属製のセパレータ基材を成形する工程と、(b)前記(a)工程で得た前記セパレータ基材表面において、少なくとも、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに隣接する部材と接触する接触面のうち、燃料電池の内部抵抗に関わる接触面上に、炭素以外の導電性物質からなる第1のコート層を形成する工程と、(c)少なくとも前記第1のコート層が形成された前記接触面上に、前記第1のコート層を被覆するように、炭素材料からなる第2のコート層を形成する工程とを備えることを要旨とする。

【0008】また、本発明の第2の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、(d)金属製のセパレータ基材を用意する工程と、(e)前記(d)工程で得たセパレータ基材表面を被覆するように、炭素以外の導電性物質からなる第1のコート層を形成する工程と、(f)前記(e)工程で前記第1のコート層を形成した前記セパレータ基材を、所定の形状を有する金型を用いて成形する工程と、(g)前記(f)工程で成形した前記セパレータ基材における前記第1のコート層の表面を被覆するように、炭素材料からなる第2のコート層を形成する工程とを備えることを要旨とする。

【0009】以上のように構成された本発明の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第1および第2の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、金属製のガスセパレータを、炭素以外の導電性物質および炭素材料によって被覆するため、貴金属などの高価な材料を用いることなく、十分な耐食性をガスセパレータに付与することができる。また、このようなガスセパレータは、燃料電池を構成したときに隣接する部材(例えばガス拡散電極)と接触する接触面が炭素材料で被覆されているため、同じく炭素材料からなる隣接部材との間の接触抵抗を小さくすることができる。このように、導電性物質からなる第1コート層と、炭素材料からなる第2コート層とを形成することによって、金属製のガスセパレータにおいて十分な耐食性と導電性とを確保できるため、十分な導電性を有し安価でありながら耐食性が不十分であるステンレスやアルミニウムなどの金属を、ガスセパレータの基材として用いることが可能となる。

【0010】本発明の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記セパレータ基材を構成する金属が、導電性を有しない被膜をその表面に形成する性質を有している場合に、前記セパレータ基材の表面のうち、少なくとも前記第1コート層が形成される領域では、前記被膜が取り除

かれていることとしてもよい。

【0011】また、本発明の第1の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、前記セパレータ基材を構成する金属が、導電性を有しない被膜をその表面に形成する性質を有している場合に、前記(b)工程において、前記第1コート層を形成するのに先立って、前記金属製のセパレータ基材表面に形成された前記被膜を除去する工程をさらに備えることとしてもよい。

【0012】さらに、本発明の第2の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、前記セパレータ基材を構成する金属が、導電性を有しない被膜をその表面に形成する性質を有している場合に、前記(e)工程において、前記第1コート層を形成するのに先立って、前記金属製のセパレータ基材表面に形成された前記被膜を除去する工程をさらに備えることとしてもよい。

【0013】このような本発明の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第1および第2の燃料電池用ガスセパレータの製造方法によれば、少なくとも内部抵抗に関わる前記接触面では、金属製のセパレータ基材の表面を覆う導電性を有しない被膜を取り除いて、第1のコート層が形成されるため、この第1のコート層を被覆する第2のコート層とセパレータ基材との間の導電性が充分に確保され、ガスセパレータの内部抵抗を充分に低くすることができる。したがって、表面に不動態膜を有するステンレスや、表面に酸化膜を有するアルミニウムによってセパレータ基材を構成する場合にも、十分な導電性を有する燃料電池用ガスセパレータを得ることができる。

【0014】また、本発明の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記第1のコート層は、表面が粗となるように形成されたこととしてもよい。あるいは、本発明の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記セパレータ基材は、少なくとも前記第1のコート層が形成される領域の表面が粗となるように形成されたこととしてもよい。

【0015】また、本発明の第1の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、前記(b)工程において、表面が粗となるように前記第1コート層を形成することとしてもよい。

【0016】あるいは、本発明の第1の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、前記(a)工程と前記(b)工程との間に、(h)前記(a)工程で成形した前記セパレータ基材において、少なくとも前記第1コート層を形成する領域の表面を粗面化する工程をさらに備えることとしてもよい。

【0017】このような本発明の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第1の燃料電池用ガスセパレータの製造方法によれば、第1コート層の表面を粗とすることによって、第1コート層と第2コート層との接着強度を向上させ、接触面積を増加させて接触抵抗を低減することができる。

【0018】また、本発明の燃料電池用ガスセパレータ

(5) 000-138067 (P2000-chn67)

と、本発明の第1および第2の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、前記第1のコート層を構成する前記導電性物質は、酸化された場合にも導電性を保持する物質であることとしてもよい。このような構成とすれば、第1コート層を形成した後、第2コート層を形成するまでの間に第1コート層を構成する導電性物質が酸化された場合にも、第1コート層の表面における導電性が損なわれてしまうことがなく、ガスセパレータにおいて充分な導電性を確保することができる。

【0019】このような本発明の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第1および第2の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、前記第1のコート層を構成する前記導電性物質は、卑金属あるいは導電性セラミックである構成も好適である。

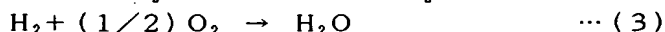
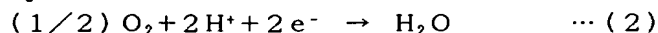
【0020】また、本発明の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第1および第2の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、前記第2のコート層を構成する前記炭素材料は、熱膨張黒鉛を備えることとしてもよい。

【0021】このように、第2コート層を構成する炭素材料として熱膨張黒鉛を用いれば、炭素材料をセパレータ基材上に圧着して第2コート層を形成する際に、炭素材料にバインダを加える必要がなく、バインダに起因してセパレータ表面の導電性が損なわれることがない。

【0022】また、本発明の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第1および第2の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、前記第2のコート層は、前記炭素材料の他に、耐酸性を有する樹脂をバインダとして含むこととしてもよい。

【0023】このように、前記第2コート層は、前記炭素材料の他に、耐酸性を有する樹脂をバインダとして含むこととすれば、燃料電池用ガスセパレータの耐酸性（酸性条件下での安定性）を向上させることができる。例えば固体高分子型燃料電池内では、電解質層は、湿潤状態の固体高分子電解質膜からなり、電池の動作中にはこの電解質膜中をプロトンが移動する。したがって、ガスセパレータに隣接して配設される電解質膜が含有する溶液は酸性となり、燃料電池用ガスセパレータの耐酸性が向上することにより、燃料電池用ガスセパレータの耐久性を向上させることができる。また、炭素材料に対して樹脂をバインダとして加えることにより、第2のコート層と第1のコート層との間の密着性が向上し、燃料電池用ガスセパレータの内部抵抗をより低くすることができる。

【0024】ここで、前記樹脂は、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、ウレタン樹脂、フェノール樹脂、フェノ



【0031】(1)式はアノードにおける反応、(2)

ールエポキシ樹脂のうちの、少なくとも一つから成ることとしてもよい。

【0025】本発明の燃料電池は、積層された複数の単セルを備え、水素を含有する燃料ガスと酸素を含有する酸化ガスの供給を受け、電気化学反応によって起電力を得る燃料電池であって、隣接する前記単セル間に設けられ、一方の単セルに供給される前記燃料ガスと、他方の単セルに供給される前記酸化ガスとが混合するのを防ぐガスセパレータを備え、該ガスセパレータは、請求項1ないし9いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータであることを要旨とする。

【0026】このような燃料電池によれば、充分な耐食性と導電性とを有するガスセパレータを備えているため、燃料電池を長時間稼働させた場合にも、ガスセパレータの腐食に起因して内部抵抗が増大してしまうことがなく、充分な性能を維持することができる。

【0027】

【発明の実施の形態】以上説明した本発明の構成・作用を一層明らかにするために、以下本発明の実施の形態を実施例に基づき説明する。図1は、本発明の好適な一実施例であるセパレータ30の断面の様子を模式的に表わす説明図である。本発明の第1実施例のセパレータ30は、ステンレスによって構成された基材部60と、この基材部60を被覆する層であってスズによって構成された第1コート層62と、この第1コート層62をさらに被覆する層であって熱膨張黒鉛によって形成された第2コート層64とからなる。このセパレータ30に関する詳しい説明に先立って、説明の便宜上、まず、セパレータ30を用いて構成される燃料電池について以下に説明する。

【0028】本発明の第1実施例であるセパレータ30を用いて構成した燃料電池は、構成単位である単セルを複数積層したスタック構造を有している。図2は、燃料電池の構成単位である単セル28の構成を例示する断面模式図、図3は、単セル28の構成を表わす分解斜視図、図4は、単セル28を積層したスタック構造14の外観を表わす斜視図である。

【0029】本実施例の燃料電池は、固体高分子型燃料電池である。固体高分子型燃料電池は、湿潤状態で良好な導電性を示す固体高分子からなる膜を電解質層として備えている。このような燃料電池は、アノード側に水素を含有する燃料ガスの供給を受け、カソード側に酸素を含有する酸化ガスの供給を受けて、以下に示す電気化学反応を進行する。

【0030】

式はカソードにおける反応を表わし、燃料電池全体では

(6) 000-138067 (P2000-d:Γ橋)

(3) 式に示す反応が進行する。このように、燃料電池は、燃料電池に供給される燃料が有する化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換するものであり、エネルギー効率が非常に高い装置として知られている。燃料電池の構成単位である単セル28は、図2に示すように、電解質膜21と、アノード22およびカソード23と、セパレータ30a、30bとから構成されている。

【0032】アノード22およびカソード23は、電解質膜21を両側から挟んでサンドイッチ構造を成すガス拡散電極である。セパレータ30a、30bは、このサンドイッチ構造をさらに両側から挟みつつ、アノード22およびカソード23との間に、燃料ガスおよび酸化ガスの流路を形成する。アノード22とセパレータ30aとの間には燃料ガス流路24Pが形成されており、カソード23とセパレータ30bとの間には酸化ガス流路25Pが形成されている。実際に燃料電池を組み立てるときには、上記単セル28を所定の枚数積層してスタック構造14を形成する。

【0033】図2では、各セパレータ30a、30bの片面においてだけガス流路を成すリブが形成されているように表わされているが、実際の燃料電池では、図3に示すように、各セパレータ30a、30bは、その両方の面にそれぞれリブ54およびリブ55を形成している。セパレータ30a、30bのそれぞれの片面に形成されたリブ54は隣接するアノード22との間で燃料ガス流路24Pを形成し、セパレータ30の他面に形成されたリブ55は隣接する単セルが備えるカソード23との間で酸化ガス流路25Pを形成する。したがって、セパレータ30a、30bは、ガス拡散電極との間でガスの流路を形成すると共に、隣接する単セル間で燃料ガスと酸化ガスとの流れを分離する役割を果たしている。このように、セパレータ30a、30bは、実際に組み立てられる燃料電池では、形態上、あるいは働きの上で区別はなく、以後、セパレータ30と総称する。

【0034】なお、各セパレータの表面に形成されたリブ54、55の形状は、ガス流路を形成してガス拡散電極に対して燃料ガスまたは酸化ガスを供給可能であれば良い。本実施例では、各セパレータの表面に形成されたリブ54、55は平行に形成された複数の溝状の構造とした。図2では、単セル28の構成を模式的に表わすために、燃料ガス流路24Pと酸化ガス流路25Pとを平行に表わしたが、燃料電池を組み立てる際に実際に用いるセパレータ30では、各セパレータ30の両面で、リブ54とリブ55とがそれぞれ直交する方向となるように、リブ54、55を形成した。

【0035】電解質膜21は、固体高分子材料、例えばフッ素系樹脂により形成されたプロトン伝導性のイオン交換膜であり、湿潤状態で良好な電気伝導性を示す。本実施例では、ナフィオン膜（デュポン社製）を使用した。電解質膜21の表面には、触媒としての白金または

白金と他の金属からなる合金が塗布されている。

【0036】アノード22およびカソード23は、共に炭素繊維からなる糸で織成したカーボクロスにより形成されている。なお、本実施例では、アノード22およびカソード23をカーボクロスにより形成したが、炭素繊維からなるカーボンペーパーまたはカーボンフェルトにより形成する構成も好適である。

【0037】セパレータ30は、既述したように、金属製の基材部60上に2層のコート層が形成されている。このセパレータ30の周辺部には、4つの穴構造が設けられている。燃料ガス流路24Pを形成するリブ54を連絡する燃料ガス孔50、51と、酸化ガス流路25Pを形成するリブ55連絡する酸化ガス孔52、53である。燃料電池を組み立てたときには、各セパレータ30が備える燃料ガス孔50、51はそれぞれ、燃料電池内部をその積層方向に貫通する燃料ガス供給マニホールドおよび燃料ガス排出マニホールドを形成する。また、各セパレータ30が備える酸化ガス孔52、53は、同じく燃料電池内部をその積層方向に貫通する酸化ガス供給マニホールドおよび酸化ガス排出マニホールドをそれぞれ形成する。

【0038】以上説明した各部材を備える燃料電池を組み立てるときには、セパレータ30、アノード22、電解質膜21、カソード23、セパレータ30の順序で順次重ね合わせ、その両端にさらに集電板36、37、絶縁板38、39、エンドプレート40、41を配置して、図4に示すスタック構造14を完成する。集電板36、37にはそれぞれ出力端子36A、37Aが設けられており、燃料電池で生じた起電力を出力可能となっている。

【0039】エンドプレート40は、図4に示すように2つの穴構造を備えている。一つは燃料ガス孔42、もう一つは酸化ガス孔44である。エンドプレート40と隣接する絶縁板38および集電板36は、エンドプレート40が備える2つの穴構造と対応する位置に同様の2つの穴構造を形成している。この燃料ガス孔42は、セパレータ30の備える燃料ガス孔50の中央部に開口している。なお、燃料電池を動作させるときには、燃料ガス孔42と図示しない燃料供給装置とが接続され、水素リッチな燃料ガスが燃料電池内部に供給される。同様に、酸化ガス孔44は前記セパレータ30の備える酸化ガス孔52の中央部に対応する位置に形成されている。燃料電池を動作させるときには、この酸化ガス孔44と図示しない酸化ガス供給装置とが接続され、酸素を含有する酸化ガスが燃料電池内部に供給される。ここで、燃料ガス供給装置と酸化ガス供給装置は、それぞれのガスに対して所定量の加湿および加圧を行なって燃料電池に供給する装置である。

【0040】また、エンドプレート41は、エンドプレート40とは異なる位置に2つの穴構造を備えている。

(7) 000-138067 (P2000-0F67)

絶縁板39、集電板37もまたエンドプレート41と同様の位置に、それぞれ2つの穴構造を形成している。エンドプレート41が備える穴構造の一つ燃料ガス孔43はセバレータ30の備える燃料ガス孔51の中央部に対応する位置に開口している。もう一つの穴構造である酸化ガス孔45はセバレータ30の備える酸化ガス孔53の中央部に対応する位置に開口している。燃料電池を動作させるときには、燃料ガス孔43には図示しない燃料ガス排出装置が接続され、酸化ガス孔45には図示しない酸化ガス排出装置が接続される。

【0041】以上説明した各部材からなるスタック構造14は、その積層方向に所定の押圧力がかかった状態で保持され、燃料電池が完成する。スタック構造14を押圧する構成については図示は省略した。

【0042】次に、以上のような構成を備えた燃料電池における燃料ガスおよび酸化ガスの流れについて説明する。燃料ガスは、上記した所定の燃料ガス供給装置から、エンドプレート40に形成された燃料ガス孔42を経て燃料電池内部に導入される。燃料電池内部で燃料ガスは、燃料ガス供給マニホールドを介して各単セル28が備える燃料ガス流路24Pに供給され、各単セル28のアノード側で進行する電気化学反応に供される。燃料ガス流路24Pから排出された燃料ガスは、燃料ガス排出マニホールドに集合してエンドプレート41の燃料ガス孔43に達し、この燃料ガス孔43から燃料電池の外部へ排出されて、所定の燃料ガス排出装置に導かれる。

【0043】同様に酸化ガスは、上記した所定の酸化ガス供給装置から、エンドプレート40に形成された酸化ガス孔44を経て燃料電池内部に導入される。燃料電池内部で酸化ガスは、酸化ガス供給マニホールドを介して各単セル28が備える酸化ガス流路25Pに供給され、各単セル28のカソード側で進行する電気化学反応に供される。酸化ガス流路25Pから排出された酸化ガスは、酸化ガス排出マニホールドに集合してエンドプレート41の酸化ガス孔45に達し、この酸化ガス孔45から上記所定の酸化ガス排出装置に排出される。

【0044】次に、本発明の要部に対応するセバレータ30の構成について説明する。セバレータ30は、既述したように、基材部60と、第1コート層62と第2コート層64とから構成されている。ここで、基材部60は、所定の凹凸形状を有するステンレス製の2枚の基材板65、66を張り合わせるによって形成されており、基材部60の両面を第1コート層62が被覆し、この第1コート層62をさらに第2コート層64が被覆している。図5は、セバレータ30の製造工程を表わす説明図である。

【0045】セバレータ30を製造する際には、まず、ステンレスの薄板を機械的にプレスすることによって、所定の凹凸形状を有する2枚の基材板65、66を形成する(ステップS100)。ここで、プレス成形によ

て形成される凹凸形状は、セバレータ30を燃料電池に組み込んだときに、この凹凸形状によって、既述した燃料ガス流路24Pおよび酸化ガス流路25Pを形成可能となるものである。ステップS100においてステンレス板を機械的にプレスして所定の凹凸形状に成形した基材板65、66板としては、ステンレス板を張り出し成形したものや曲げ加工品、あるいは、ステンレス板を部分的に打ち抜いて成形するハーフシャ品などを用いることができる。

【0046】次に、ステップS100で得た基材板65、66の表面にスズメッキを施し、第1コート層62を形成する(ステップS110)。ここで、第1コート層62を形成する面は、基材板65、66を後述するように貼り合わせてセバレータ30を製造したときに、外側に面する側の面である。この第1コート層62は、電解メッキ、無電解メッキのいずれの方法によって形成してもよい。このように、ステップS110において第1コート層62を形成する際には、この第1コート層62を形成するための上記したメッキ処理などに先立って、基材板65、66に対して表面処理を施し、ステンレス板の表面に形成された不動態層を除去する。なお、基材板65、66において、互いに貼り合わされる側の面は、燃料ガスおよび酸化ガスにさらされることがないため、上記したメッキの処理は不要であるが、接触抵抗低減のためには、基材板65、66の両面において、上記した不動態層の除去を行ない、上記第1コート層62および後述する第2コート層64を形成することが望ましい。また、このように接触抵抗を低減するためには、上記した互いに貼り合わされる側の面には、第1コート層62のみを形成することとしても構わない。

【0047】次に、ステップS110でスズメッキを施した基材板65、66の表面に、熱膨張黒鉛からなる第2コート層64を形成する(ステップS120)。熱膨張黒鉛は、炭素材料の一種であり、天然黒鉛やカーボンブラック等の炭素材料を酸で処理した後に加熱して体積を膨張させた周知の材料である。このような熱膨張黒鉛は、熱膨張したことによって層構造を形成しており、圧縮する力を加えることによってこれらの層が互いにかみ合って強固に結合させることができるため、成形時にバインダを加える必要がない。第2コート層64は、熱膨張黒鉛からなるカーボンシートを成形しておき、このカーボンシートを、上記基材板65、66において第1コート層62を形成した面上に、所定の形状の金型を用いて圧着させることによって形成した。あるいは、あらかじめカーボンシートを成形しておく代わりに、上記第1コート層62を形成した基材板上に、所定の形状の金型を用いて熱膨張黒鉛粉末を直接圧着させることとしてもよい。このように、第1コート層62上に熱膨張黒鉛からなる層を圧着させる際には、十分な接着強度を得るために、圧着に用いる金型内を略真空にすることが望まし

(8) 000-138067 (P2000-0y67)

い。また、上記した金型内での圧着の操作は、機械的にプレスすることとしてもよいし、静水圧を用いる構成も好ましい。

【0048】上記したようにそれぞれ第1コート層62および第2コート層64を形成した基材板65、66において、第1コート層62および第2コート層64を形成していない面同士を互いに貼り合わせると、セパレータ30が完成する（ステップS130）。基材板65、66を互いに貼り合わせる方法としては、導電性ペーストなどの接着剤で接着する方法や、超音波などを利用して溶接するなどの方法を採用することができる。貼り合わされる基材板65、66の間で、十分な導電性を確保することができればよい。また、第1コート層62および第2コート層64で被覆した基材板65、66を作製した後に、これらの基材板65、66を互いに貼り合わせるという上記した構成の代わりに、まず基材板65、66を貼り合わせて基材部60を形成し、この基材部60の表面に第1コート層62および第2コート層64を形成することとしてもよく、また、第1コート層62を設けた基材板65、66を貼り合わせて、第1コート層62を備える基材部60を形成し、この基材部60の表面にさらに第2コート層64を形成することとしてもよい。

【0049】以上のように構成されたセパレータ30を用いた燃料電池によれば、その表面を熱膨張黒鉛からなる炭素材料によって被覆しているため、燃料電池を構成するガスセパレータとして用いた場合に、十分な耐食性を実現することができる。さらに、セパレータ30の表面を炭素材料で被覆し、炭素材料からなるガス拡散電極と隣接させて燃料電池を構成することによって、ガスセパレータの表面と、これに隣接するガス拡散電極とが、同じ炭素材料で構成されるため、ガスセパレータとガス拡散電極との間の接触抵抗をより小さくすることができる。また、金属製のガスセパレータを被覆して耐食性を確保するために、卑金属であるスズと熱膨張黒鉛とを用いており、白金やロジウムなどの貴金属を用いる必要がないため、コストの上昇を抑えることができる。また、本実施例のセパレータ30では、金属をメッキした層である第1コート層62を、さらに炭素材料で被覆しているため、金属メッキ層の微小な孔から徐々に腐食が進んでしまうことがなく、耐食性を十分に確保することができる。さらに、本実施例のセパレータ30によれば、製造工程を簡素化でき、強度に優れて安価なガスセパレータを得ることができるという、金属セパレータに共通する既述した効果を奏することができる。

【0050】ここで、本実施例のセパレータ30は、ステンレス製の金属板に対して、一旦スズメッキを施し、さらに表面を炭素材料でコートしているため、十分な導電性を確保することができる。ステンレスは、十分な導電性と強度と成形性とを有し、安価な金属であり、ガスセパレータを構成する材料として好ましい。しかしなが

らステンレスは、その表面に、導電性を有しない不動態皮膜が形成されており、ステンレス製の部材表面を直接炭素材料で被覆しても、この不動態皮膜によって、ステンレスからなる基材板と炭素材料からなる被膜との間の接触抵抗が上昇してしまうという不都合を生じる。本実施例のセパレータ30では、ステンレスからなる基材板65、66上に炭素材料からなる第2コート層64を形成する前に、まず、スズの薄膜である第1コート層62を形成している。この第1コート層62を形成するために基材板65、66上にメッキ処理を施す際には、既述したように、メッキ処理に先立って表面処理を行なって上記不動態層を取り除くため、セパレータ30において、ステンレス表面の不動態層に起因して接触抵抗が増大してしまうことがない。ここで、第1コート層62を構成するスズは、酸化されても十分な導電性を保持するため、熱膨張黒鉛からなる第2コート層64を形成するのに先立って、第1コート層62を構成するスズが酸化されても、セパレータ30の導電性が損なわれることはない。

【0051】このように、第1コート層62は、基材板65、66表面の不動態層を取り除き、その後の不動態層の形成を防止し、第2コート層64との間の導電性を確保するために形成されるものであり、セパレータ30の耐食性は第2コート層64によって確保される。したがって、完成したセパレータ30においてその耐食性に寄与しない第1コート層62を厚く形成する必要はなく、第1コート層62を形成するために用いるスズの量を抑えて、コストの上昇を抑えることができる。

【0052】また、炭素材料から成る第2コート層64を設けることにより、金属材料と電解質層とが直接接することがない。金属セパレータを備える燃料電池では、電池が動作する間に、電解質層に接する金属セパレータから、セパレータを構成する金属が、微量ながら電解質層中（電解質膜が含む液体中）に溶け出していく。このことは、セパレータの耐食性を低下させるのに加えて、さらに電解質膜におけるイオン（プロトン）の移動速度を低下させてしまい、燃料電池から得られるエネルギー量が低下してしまうという問題を生じる。本実施例のセパレータ30のように、その表面を炭素材料から成る第2コート層64で覆うことにより、セパレータを構成する金属が電解質層中に溶け出すおそれなくなり、燃料電池から出力されるエネルギー量が低下してしまうことがない。

【0053】なお、セパレータ30を構成する基材板65、66の材料として用いる金属は、ステンレスの他、アルミニウムやニッケル、チタンなど、十分な導電性と強度と成形性を有する金属であればよく、製造コストなどを考慮して適宜選択すればよい。ここで、アルミニウムなどは空気中で容易に酸化されて、導電性を有しない酸化膜を表面に形成してしまう。このような金属を用い

(9) 000-138067 (P2000-P67)

る場合には、上述したステンレスの場合と同様に、メッキ処理などにより基材板上にさらに金属層を形成する際に、表面処理を行なって酸化膜を取り除くことによって、製造されたセパレータにおいて、この酸化膜に起因して接触抵抗が上昇してしまうのを防ぐことができる。

【0054】第1コート層62を構成する材料としては、上記スズの他、ニッケルやチタンなど酸化しても導電性を有する金属、あるいは導電性を有するセラミックなどを用いることができる。導電性を有するセラミックとしては、例えば、窒化チタンや窒化クロムなどの窒化物、あるいは、酸化スズや酸化タングステン、酸化インジウム、ITO（インジウムとスズの複合酸化物）などの酸化物を挙げることができる。第1コート層62を構成する材料は、充分な導電性を有しており、第2コート層64を形成するのに先立って、導電性を有しない酸化膜や不動態膜を形成しないものであればよい。また、基材板65、66の表面に酸化膜や不動態膜が形成されており、あらかじめこれらの膜を取り除いた場合に、再び導電性を有しない膜が形成される前に、メッキなどの方法によって基材板65、66上に成膜可能な導電性物質であればよい。

【0055】導電性を有する金属からなる第1コート層62を形成する方法としては、上記した無電解メッキあるいは電解メッキ以外の方法、例えば、スパッタなどの方法を用いることができる。導電性を有するセラミックを用いる場合には、スパッタによって容易に第1コート層62を形成することができるが、特に酸化物のセラミックを用いる場合には、スズやタングステンを含む溶液を基材板65、66上に吹き付け、これを高温で処理して酸化させる方法を探ることもできる。

【0056】炭素材料からなる第2コート層64は、天然黒鉛やカーボンブラックなどの炭素粉末に、所定のバインダを加えて形成することとしてもよいが、上記した実施例のように熱膨張黒鉛を用いれば、バインダが不要となり、セパレータ30において充分な導電性を確保するために好ましい。また、熱膨張黒鉛を用いて第2コート層64を形成する際に、他種の炭素材料（天然黒鉛やカーボンブラックなど）を熱膨張黒鉛に混合して用いる構成も好適である。薄片状の熱膨張黒鉛を圧縮して形成したカーボン層では、層に平行な方向での導電性は優れているが、垂直方向での導電性はこれに比べて劣る。上記したように他種の炭素材料を混ぜることによって、熱膨張黒鉛を構成する薄片間を、この他種の炭素材料によって連絡することができ、垂直方向（すなわち、燃料電池の積層方向）での導電性も充分に確保することができる。したがって、熱膨張黒鉛に混合する他種の炭素材料は、薄片上の熱膨張黒鉛が形成する層の間を充分に連絡可能となる粒径および量であればよい。ここで、熱膨張黒鉛に混合する他種の炭素材料の量を所定量以下に抑えるならば、炭素材料を圧縮してカーボン層を形成する際

に、特別にバインダを加える必要がなく、熱膨張黒鉛の結着性だけで充分にカーボン層を形成することができ

る。

【0057】燃料電池を構成する際に、上記した実施例のセパレータを用いた場合の効果を調べた結果を図6および図7に示す。図6は、種々のセパレータを用いて構成した燃料電池が示す単位面積当たりの接触抵抗を表わす説明図である。図6中、(1)は、ステンレスだけで形成されたセパレータを用いて構成した燃料電池における結果を示し、(2)は、ステンレスからなる基材部にスズメッキを施したセパレータを用いて構成した燃料電池における結果を表わし、(3)は、ステンレスからなる基材部にニッケルメッキを施したセパレータを用いて構成した燃料電池における結果を表わし、(4)は、熱膨張黒鉛をプレス成形して得たセパレータを用いて構成した燃料電池における結果を表わす。なお、図6において、(1)～(3)では、熱膨張黒鉛からなる層によってセパレータ表面をさらに被覆した場合と、しない場合の結果を併せて示した。

【0058】図6に示した結果から、ステンレスからなる基材板表面に、スズやニッケルなどのメッキを施すことによって、きわめて接触抵抗の低いセパレータが得られることがわかる。(1)に示したステンレスからなるセパレータを用いると、表面に不動態層が形成されているため接触抵抗が高くなり、ステンレスとは異なる材料である熱膨張黒鉛によってその表面を被覆する場合には、接触抵抗はさらに上昇してしまう。(4)に示した熱膨張黒鉛からなるセパレータを用いる場合には、このセパレータは、導電性を低下させるバインダを含まず、燃料電池において隣接するガス拡散層と同じ炭素材料からなるため、きわめて低い接触抵抗を示す。(2)および(3)に示した上記実施例に対応するセパレータを用いる場合には、(4)に示した熱膨張黒鉛からなるセパレータを用いる場合と同様のきわめて低い接触抵抗を示す。なお、(2)および(3)の結果で、熱膨張黒鉛による被覆の有無に関わらず、同様に低い接触抵抗を示すのは、この接触抵抗の測定の実験が短時間で行なわれるものであり、耐食性の程度の影響をほとんど受けないためである。

【0059】図7は、ステンレス単独からなるセパレータと、ステンレスからなる基材板にスズメッキを施したセパレータと、このスズメッキを施したセパレータ表面をさらに熱膨張黒鉛で被覆したセパレータ（セパレータ30に対応）とのそれぞれを用いて構成した燃料電池において、経時的に出力電圧の変化を調べた結果を表わす説明図である。上記実施例のセパレータ30に対応するセパレータを用いて構成した燃料電池では、長時間継続して発電を行なった場合にも、抵抗値が上昇してしまうことがなく、高い出力電圧を維持することができる。これに対して、ステンレス単独、あるいはステンレス+ス

(000100-138067 (P2000-chJ67

ズメッキのセパレータを用いた場合には、時間の経過と共に表面の腐食が進んでしまうため、抵抗が上昇し、出力電圧が低下してしまう。

【0060】上記した説明では、第2コート層64を熱膨張黒鉛によって形成した場合の効果を示したが、第2コート層64を構成する炭素材料として天然黒鉛やカーボンブラックを用い、さらにバインダを加える構成としても、金属製のセパレータにおいて第1コート層62および第2コート層64を設けることによる既述した効果を得ることができる。また、第2コート層を構成する炭素材料にバインダを加える場合には、バインダとして酸性条件下で安定な樹脂を用いることによって、セパレータの耐久性、ひいては燃料電池の耐久性を向上させることができる。以下に、このような構成について説明する。

【0061】酸性条件下で安定であり、上記した炭素材料によって第2コート層64を形成する際にバインダとして用いることのできる樹脂としては、例えば、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、ウレタン樹脂、フェノール樹脂、フェノールエポキシ樹脂などを挙げることができる。これらの樹脂を単独、あるいはこれらのうちの複数の樹脂を組み合わせ、黒鉛（人造黒鉛、鱗片状黒鉛、鱗状黒鉛、土状黒鉛など）やカーボンブラック（チャンネルブラック、ファーネスブラック、アセチレンブラック、ケッチェンブラックなど）等の炭素材料にバインダとして混合して、第2コート層64を形成することができる。このような第2コート層64を形成するには、上記炭素材料と溶解したバインダとを混合したものに、第1コート層62を形成した基材板65、66を浸漬したり、あるいは上記混合物を第1コート層62上にスプレーすればよい。また、上記混合物を、カーテンフロー塗装により塗布することもできる。なお、上記した説明では、金属製の薄板を成形した基材板65、66上に、第1コート層62および第2コート層64を形成することとしたが、金属板の成形に先立って、金属板上に第1コート層62および第2コート層64を形成し、これをさらに成形して所定の凹凸形状を設けることとしてもよい。このような場合には、ロール塗装によって第2コート層64を形成することもできる。

【0062】固体高分子型燃料電池では、既述したようにセパレータ30が隣接する電解質膜21は、電池が動作している間は湿潤状態が保たれるが、この電解質膜内部をプロトンが移動するため、燃料電池の動作中には、電解質膜中に含まれる液体は酸性となる。セパレータ30の外表面を構成する第2コート層64が備える炭素材料は、高い耐酸性を備えているが、この炭素材料に加えるバインダとして、上記したように耐酸性に優れた樹脂を用いることにより、セパレータ30の耐酸性を充分に確保することができ、これによって、燃料電池の耐久性を向上させることができる。

【0063】さらに、バインダを加えることにより、第1コート層62と、第2コート層64を構成する炭素材料との間の密着性を向上させることができるという効果が得られる。このように、金属コートを施した（第1コート層62を設けた）金属製の基材部60に対する第2コート層64の密着性が高まることにより、燃料電池の動作中に、炭素材料からなる第2コート層64が次第に剥離してしまうのが抑えられる。したがって、セパレータ30の耐酸性および耐久性を充分に確保することができると共に、セパレータ30において金属からなる層が腐食を受けることに起因して燃料電池の内部抵抗が増大してしまうのを抑えることができる。

【0064】なお、ここでは天然黒鉛やカーボンブラックなどの炭素材料にバインダを加える場合について説明したが、既述した実施例のように熱膨張黒鉛を用いて第2コート層64を形成する場合に、垂直方向（燃料電池の積層方向）の導電性を確保するために熱膨張黒鉛に対して他種の炭素材料を加えて第2コート層64を形成するときには、さらにバインダとして上記した耐酸性に優れた樹脂を用いることとしてもよい。

【0065】また、このように、炭素材料にバインダを加えて第2コート層を形成する際に、このバインダにさらに硬化剤を加えることとしても良い。硬化剤としては、エポキシ樹脂やメチル化メラミン樹脂などを用いることができる。このような硬化剤を加えることによって、さらに、第1コート層62と、第2コート層64を構成する炭素材料との間の密着性を向上させることができる。また、このように密着性が向上することによって、上記したようにセパレータ30の耐酸性および耐久性をさらに向上させることができる。

【0066】以上、上記実施例のセパレータ30を用いて燃料電池を構成したときの効果を示したが、このセパレータ30において、第1コート層62は、熱膨張黒鉛からなる第2コート層64との接着強度を向上させ、接触面積を増加させて接触抵抗をより低減するために、その表面が粗であることが望ましい。以下に、第1コート層62の表面を粗にする構成について説明する。無電解メッキは、表面が粗であるメッキ面を形成する優れた方法である。また、電解メッキによって第1コート層62を形成する場合にも、表面が粗であるメッキ面を形成することが可能であり、メッキの際の電流密度を調節することによって、メッキ面の粗密の状態を容易にコントロールすることができる。あるいは、無電解メッキや電解メッキを行なう際にメッキ浴中に第3成分を添加してメッキ処理を行ない、メッキ処理を行なった後に、形成されたメッキ層から第3成分を除いてメッキ面を粗にするという方法を採用することもできる。メッキ浴中に添加する第3成分としては、例えば、ポリテトラフルオロエチレン、フェノール樹脂などの樹脂を挙げることができる。上記第3成分としてメッキ浴中に添加し、第1コート層

(註1) 100-138067 (P2000-67)

62に取り込ませた樹脂は、熱溶融によって除去することができ、これによって第1コート層62の表面を粗にすることができる。

【0067】あるいは、メッキ浴中に添加する上記第3成分として、黒鉛を用いることもできる。この場合には、第2コート層64を構成するのと同じ黒鉛材料を第1コート層62に取り込ませることによって、第1コート層62を構成するメッキ層と、第2コート層を形成する黒鉛の層との間の接触面積を増加させて、接触抵抗を減少させることができる。

【0068】また、表面が粗である第1コート層62を形成する他の方法として、基材板65、66をプレス成形するのに先立ってメッキ処理を施すという方法を採用することもできる。すなわち、図5に示したセパレータ30の製造方法では、プレス成形によって所定の凹凸形状を形成した基材板65、66に対して、第1コート層62を形成するためのメッキ処理を施したが、平板状のステンレス板の表面に対してまずメッキ処理を施し、このメッキしたステンレス板をプレス成形して所定の凹凸形状を形成させる。これによって、プレス成形に先立って形成したメッキ層にクラックが生じるため、メッキ層からなる第1コート層62の表面を粗にすることができる。この場合、プレス成形の方法として張り出し成形を行えば、特に効果的にクラックを生じさせることができる。あるいは、後述するようにステンレスの厚板を用いて基材部60を形成する場合には、メッキしたステンレスの厚板を鍛造によって成形することで、メッキ層において効果的にクラックを生じさせることができる。また、上記したように第1コート層62を形成した基材板65、66をプレス成形に供する際に、メッキ処理によって第1コート層62を形成した基材板65、66を用いる代わりに、クラッド材を用いることとしてもよい。すなわち、第1の金属からなる地金上に第2の金属を圧延などの方法で接合した金属板であるクラッド材を用いても、同様の効果を得ることができる。

【0069】あるいは、金属微粉末を噴射する方法（ショットピーニング、ドライブラスト、ショットブラストなどの呼び方があるが、以後ショットピーニングに統一する）を用いることによって、表面が粗である第1コート層62を形成することもできる。ショットピーニングは、金属微粉末を、ノズルから圧縮空気と共に対象物に向かって噴射する方法であるが、粒径が数十 μm 程度のスズの微粉末を、基材板65、66に向かって噴射することによって、クラックやボアなどがなく、表面だけが粗となっているスズメッキ層である第1コート層62を、基材板65、66上に形成することができる。ショットピーニングにおいて、金属微粉末が対象物に衝突する際には、金属微粉末の有する運動エネルギーの一部が熱エネルギーに変換して対象物表面の温度が上昇するが、噴射する金属微粉末としてスズの微粉末を用いると、温度

が上昇した対象物表面でスズ微粉末が融けて広がり、スズのメッキ層が形成される。

【0070】上記したようにショットピーニングによって第1コート層62を形成するには、対象物に噴射する金属微粉末を、融点が低い（500℃以下程度の融点を有する）金属により形成すればよい。ショットピーニングによって、メッキ層である第1コート層62を形成可能となるような、融点が低い金属としては、上記したスズの他、亜鉛、インジウム、鉛、ビスマスなどを挙げることができる。また、Sn-Pb系合金、Sn-Bi系合金、Sn-In系合金などの合金からなる微粉末も、上記したショットピーニングによるメッキ層形成に用いることができる。

【0071】表面が粗である第1コート層62を形成した後は、既述した実施例と同様に、この第1コート層62の上に熱膨張黒鉛からなる第2コート層64を形成し（図5のステップS120参照）、あるいは炭素材料にバインダを加えた第2コート層64を形成し、第1コート層62および第2コート層64を形成した基材板65、66を貼り合わせて（図5のステップS130参照）、セパレータを完成させればよい。ここで、ショットピーニングにより第1コート層62を形成すると、既述した無電解メッキや電解メッキといった方法、あるいは、無電解メッキや電解メッキの際に第3成分を添加する方法により第1コート層62を形成する場合よりも、第1コート層62の表面が粗である程度を大きくすることができ、熱膨張黒鉛からなる第2コート層64との接着強度を向上させ、接触面積を増加させて接触抵抗をより低減する効果を得ることができる。なお、ショットピーニングの際に用いる金属微粉末の粒径は、形成されるメッキ層がボアのない均一な層となる程度に小さく、形成されるメッキ層の表面が十分に粗となる程度に大きい粒径であればよい。また、形成されるメッキ層の表面がどのくらい粗であるかという程度は、上記した金属微粉末の粒径の他、噴射の際の圧縮空気の圧力によっても調節することができる。なお、ショットピーニングによって第1コート層62を形成する方法は、電解メッキによって第1コート層62を形成する方法に比べて、エネルギー消費量が少なく済み、メッキ速度が速いという利点も有している。

【0072】既述した無電解メッキや電解メッキ、あるいは、ショットピーニングによって第1コート層62を形成する方法は、第1コート層62を形成する際にその表面を粗とする方法であるが、第1コート層62を形成するのに先立って、基材板65、66の表面を粗とする処理を行ない、表面が粗となった基材板65、66の表面にメッキ層を形成することによって、表面が粗である第1コート層62を形成することもできる。このような方法を以下に説明する。

【0073】基材板65、66の表面を粗とするには、

(図2) 100-138067 (P2000-667)

ショットピーニング、あるいは、エッチングなどの方法を用いることができる。ショットピーニングによって基材板65、66の表面を粗にするには、既述した第1コート層62をショットピーニングにより形成する場合とは異なり、対象物に噴射しても対象物表面に留まることのない程度に融点が高い金属からなる金属微粉末を用いる。このように融点が高い金属微粉末を噴射することによって、基材板65、66の表面を粗とすることができる。ショットピーニングにより基材板65、66の表面がどのくらい粗となるかという程度は、用いる金属微粒子の粒径や噴射の際の圧縮空気の圧力を調節することにより調節することができる。エッチングは、基材板65、66の表面を、所定のエッチング処理剤を用いて腐食させ、これによって基材板65、66の表面を粗とする方法である。エッチングによって基材板65、66の表面を粗にする場合は、エッチング処理剤の濃度、処理時間、エッチングを行なうときの温度などによって、基材板65、66の表面が粗となる程度を調節することができる。

【0074】ショットピーニングやエッチングによって基材板65、66の表面を粗にした後は、この基材板65、66に対して、通常は無電解メッキあるいは電解メッキを施すことにより、表面が粗である第1コート層62を形成することができる。第1コート層62を形成した後は、既述した実施例と同様に、この第1コート層62上に第2コート層64を形成し、基材板65、66を貼り合わせてセパレータを完成する。ショットピーニングやエッチングによって表面を粗面化した基材板65、66をメッキして形成した第1コート層62は、既述した無電解メッキやショットピーニングによって第1コート層62を形成する場合に比べて、第1コート層62の表面が粗である程度がさらに大きくなり、熱膨張黒鉛からなる第2コート層64との接着強度をさらに向上させることができる。例えば、無電解メッキによって第1コート層62を形成する場合には、その表面は1 μ m未満程度の大きさの凹凸が形成された状態となるが、ショットピーニングやエッチングによって粗面化した基材板65、66上に第1コート層62を形成する場合には、その表面は1～数十 μ m程度の大きさの凹凸が形成された状態となる。

【0075】また、第1コート層62の表面を粗面化する方法として、発泡金属を用いて第1コート層62を形成することもできる。すなわち、基材板65、66の表面に、薄い発泡金属（例えば発泡ニッケル）を貼り付けて第1コート層62を形成してもよい。第1コート層62を発泡金属で形成することによって、上述したショットピーニングなどを用いる構成と同様に、この第1コート層62上に形成する第2コート層64との間の接着強度を向上させることができる。基材板65、66上に発泡金属を貼り付ける方法としては、導電性の樹脂やハン

ダなどを用いて接着してもよいし、あるいは、基材板65、66を形成する金属板が十分に柔らかければ、圧着によって基材板65、66上に発泡金属を貼り付けることもできる。なお、表面に発泡金属を貼り付けた基材板65、66を作製するには、予め、基材板を構成する金属板と発泡金属とを貼り合わせた板状部材を用意し、これをプレス成形することとしてもよいし、金属板と発泡金属とを所定の順序で金型内に投入し、貼り合わせとプレス成形とを同時に行なうこととしてもよい。

【0076】また、基材板65、66上に発泡金属を貼り付ける際には、発泡金属の貼り付けに先立って、基材板65、66上にメッキ層を形成することとしてもよい。特に、基材板65、66として、表面に不動態膜を形成するステンレスや、表面に導電性を有しない酸化膜を形成するアルミニウムを用いる場合には、発泡金属を貼り付けるのに先立って、基材板65、66上の不動態膜や酸化膜を取り除いてメッキ処理を行なうことによって、セパレータの導電性を十分に確保する効果が得られる。

【0077】上述したように、セパレータ30を形成する際に、所定の凹凸形状を形成するためのプレス成形は、第1コート層62を形成する前でも後でもよいが、第2コート層64もまた、所定の凹凸形状を形成するためのプレス成形の前に形成することとしてもよい。すなわち、板状の基材板65、66上に第1コート層62および第2コート層64を形成し、その後にプレス成形を行なうこととしても構わない。この場合、第2コート層64を構成する熱膨張黒鉛は伸展性に優れているため、プレス成形による凹凸形状の形成に十分に追従することができる。

【0078】なお、セパレータ30において、貼り合わせた基材板65、66では、凸構造を形成した領域内部の貼り合わせ面において所定の空間が形成される。セパレータ30は、基材板65、66の両方が凹構造となっている領域で互いに貼り合わされており、この貼り合わされた領域でセパレータ30の導電性が確保されるため、上記空間は空隙としておいても差し支えないが、この空間にカーボンペーストなどの導電性物質を充填して、セパレータ30の導電性をさらに向上させることとしてもよい。

【0079】既述した実施例では、基材板65、66は、曲げ加工品やハーフシャ品といった薄板からの成形品を用いたが、鍛造などによって成形した厚板からの成形品を用いることとしてもよい。あるいは、鋳造品を用いることもできる。鍛造品や鋳造品を用いる場合には、鍛造時や鋳造時に、両面に所定の凹凸を有する構造を形成することができるため、既述した実施例のように2枚の基材板を貼り合わせる必要がない。このような鋳造品を用いて製造したセパレータ130の構成を図8に示す。セパレータ30が、基材板65、66からなる基材

(図 3) 100-138067 (P 2000-EG 達 橋)

部60を備えているのに対し、このセパレータ130は、鋳造によってその両面に所定の凹凸構造を一体で形成した基材部160を備えている。基材部160は、基材部60と同様に、ステンレスやアルミニウムなどの金属で構成されており、その表面には、セパレータ30と同様の第1コート層62および第2コート層64が形成されている。

【0080】また、既述したセパレータ30およびセパレータ130では、基材部60、160の表面全体を、第1コート層62および第2コート層64で被覆する構成としたが、基材部表面の一部にだけ第1コート層と第2コート層との両方を形成することとしてもよい。このような構成の一例として、セパレータ230の構成を図9に示す。セパレータ230は、セパレータ30と同様に、基材板65、66からなる基材部60を備えており、この基材部60の表面を、上記実施例と同様の導電性物質からなる第1コート層62で被覆している。さらに、第1コート層62で被覆した基材部60の表面の一部において、既述した実施例と同様の炭素材料からなる第2コート層264を形成している。ここで、第2コート層264を形成している領域は、セパレータ230を用いて燃料電池を構成したときに、隣接する部材であるガス拡散電極と接する領域である。

【0081】このように構成されたセパレータ230によれば、このセパレータ230を用いて燃料電池を形成した場合に、隣接するガスセパレータと接する面では、第1コート層62および第2コート層264が形成されているため、既述した実施例と同様に、十分な導電性および耐食性を上記接触面に備えさせることができる。したがって、燃料電池において、その内部抵抗を十分に低くすると共に十分に高い出力電圧を確保することができる。また、第2コート層264を、基材部60表面の一部にしか形成しないため、既述した実施例のセパレータに比べて、セパレータを製造する際のコストを抑えることができる。

【0082】ここで、基材部60を被覆する第1コート層62は、既述した実施例における第1コート層62と同様に形成することができるが、セパレータ230では、既述した実施例とは異なり、上記接触面以外の領域には炭素材料からなる第2コート層が形成されていない。このような領域は、セパレータ230を燃料電池に組み込んだときに導電性を確保する必要がない領域、例えば、燃料電池内で既述した燃料ガス流路24Pおよび酸化ガス流路25Pを形成する領域である。したがって、この第1コート層62を形成する導電性物質は、燃料電池が動作する環境で酸化されてその表面の導電性を失うものであってもよく、燃料電池が動作する環境内で進行する腐食の程度が許容範囲内となる導電性物質であればよい。第2コート層264は、既述した実施例における第2コート層64と同様の炭素材料によって構成す

ればよい。

【0083】上述したように、燃料電池用のガスセパレータでは、燃料電池内で隣接する部材との接触面において、耐食性と共に十分な導電性を確保できればよく、上記接触面以外の領域は、所定の耐食性を有していればよい。上記したセパレータ230では、上記接触面以外の領域における耐食性を、導電性物質で形成した第1コート層62によって確保しているが、異なる構成によって接触面の耐食性を確保することとしてもよい。このような構成の一例としてセパレータ330の構成を図10に示す。

【0084】セパレータ330は、既述した実施例と同様に、基材板65、66からなる基材部60を備え、基材部60の表面において、燃料電池内で隣接する部材と接触する接触面に対応する領域に、導電性物質からなる第1コート層362と、炭素材料からなる第2コート層364とを備えている。この第1コート層362および第2コート層364は、セパレータ30における第1コート層62および第2コート層64と同様の材料によって、同様の方法で形成すればよい。また、セパレータ330において、上記接触面以外の領域では、基材部60を被覆して、親水層370が形成されている。この親水層370は、親水性物質、例えば、酸化ケイ素や吸水性樹脂などによって構成される。

【0085】ここで、上記接触面以外の領域、具体的には燃料ガス流路24Pおよび酸化ガス流路25Pを形成する面を親水性にする効果について説明する。セパレータ330を備える燃料電池では、既述した(1)～(3)式に示した電気化学反応が進行するが、このような電気化学反応の進行に伴って、(2)式に示すようにカソード側では水が生じる。この生成水は酸化ガス中に気化して燃料電池外に排出されるが、燃料電池内で部分的に温度が低下する領域などでは、生成水が凝縮して、酸化ガスの流路における酸化ガスの流れを妨げるおそれがある。また、(1)式に示すようにアノード側で進行する電気化学反応ではプロトンを生じるが、このプロトンは水分子と水和した状態で固体電解質膜内を移動するため、燃料電池を運転する際には通常は、燃料電池に供給する燃料ガスを加湿することによって、固体電解質膜に対してアノード側から水分を補っている。したがって、加湿された燃料ガスが通過するガス流路においても、流路内で生じた凝縮水が燃料ガスの流れを妨げるおそれがある。燃料電池を構成する各単セル28内で、燃料ガス流路24Pおよび酸化ガス流路25Pを形成する面を親水性とすれば、このようなガス流路内で凝縮水が生じた場合に、この凝縮水は、流路内のガスの流れと共に親水性を有する流路の壁面に導かれて、単セル28内から容易に排出されるようになる。

【0086】したがって、セパレータ330によれば、このセパレータ330を用いて燃料電池を構成したとき

(図4) 100-138067 (P2000-PB橋)

に、隣接するガス拡散電極と接触する接触面において、充分な導電性と耐食性とを確保することができるという効果に加えて、燃料電池を構成する各単セル28内での排水性を向上させることができるという効果を奏する。さらに、親水層370を設けることによって、ガス流路の排水性を向上させる効果に加えて、セパレータ330においてガス流路を形成する領域で、充分な耐食性を確保することができるという効果を奏する。すなわち、セパレータ330のガス流路を形成する領域では、導電性物質や炭素材料からなるコート層を形成しなくても、排水性を向上させる親水層370を形成することによって、同時に充分な耐食性を得ることができる。

【0087】また、既述した実施例では、炭素材料からなる第2コート層は、導電性物質からなる第1コート層上にだけ形成したが、第1コート層が形成されていない領域にも第2コート層を形成し、この炭素材料からなる第2コート層によって、単セル内ガス流路における耐食性を確保することとしてもよい。このようなガスセパレータの一例としてセパレータ430の構成を図11に示す。

【0088】セパレータ430は、既述した実施例と同様に、基材板65、66からなる基材部60を備え、基材部60の表面において、燃料電池内で隣接する部材と接触する接触面に対応する領域に、既述した実施例と同様の導電性物質からなる第1コート層462と、これを被覆して炭素材料からなる第2コート層64とを備えている。ここで、第1コート層462は、基材部60表面の不動態膜あるいは酸化膜を除去した上記接触面にだけ形成されているが、第2コート層64は、基材部60の表面全体を被覆している。

【0089】このようなセパレータ430は、その表面全体を被覆する第2コート層64によって、充分な耐食性を付与されている。また、上記接触面では、基材部60上の不動態膜あるいは酸化膜を除去して第1コート層462を形成し、この第1コート層462上をさらに第2コート層64で被覆しているため、既述した実施例と同様に、上記接触面において充分な導電性を確保することができる。このように、第1コート層462は、上記接触面にしか形成しないため、第1コート層を形成するために用いる導電性物質の量を削減することができる。また、上記接触面以外では導電性を確保する必要がないため、基材部60上の上記接触面以外の領域では、基材部60上の不動態膜や酸化膜などを除去する必要がなく、製造工程を簡素化できる。

【0090】以上本発明の実施例について説明したが、本発明はこうした実施例に何等限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において種々なる状態で実施し得ることは勿論である。

【図面の簡単な説明】

【図1】セパレータ30の断面の様子を模式的に表わす説明図である。

【図2】燃料電池の構成単位である単セル28の構成を例示する断面模式図である。

【図3】単セル28の構成を表わす分解斜視図である。

【図4】単セル28を積層したスタック構造14の外観を表わす斜視図である。

【図5】セパレータ30の製造工程を表わす説明図である。

【図6】燃料電池が示す単位面積当たりの接触抵抗を表わす説明図である。

【図7】燃料電池における経時的な出力電圧の変化を調べた結果を表わす説明図である。

【図8】セパレータ130の構成を模式的に表わす説明図である。

【図9】セパレータ230の構成を模式的に表わす説明図である。

【図10】セパレータ330の構成を模式的に表わす説明図である。

【図11】セパレータ430の構成を模式的に表わす説明図である。

【符号の説明】

14…スタック構造

21…電解質膜

22…アノード

23…カソード

24P…燃料ガス流路

25P…酸化ガス流路

28…単セル

30, 30a, 30b, 130, 230, 330, 430…セパレータ

34P…燃料ガス流路

35P…酸化ガス流路

36, 37…集電板

36A, 37A…出力端子

38, 39…絶縁板

40, 41…エンドプレート

42, 43…燃料ガス孔

44, 45…酸化ガス孔

50, 51…燃料ガス孔

52, 53…酸化ガス孔

54, 55…リブ

60, 160…基材部

62, 362, 462…第1コート層

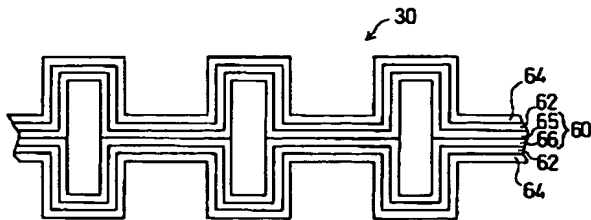
64, 264, 364…第2コート層

65, 66…基材板

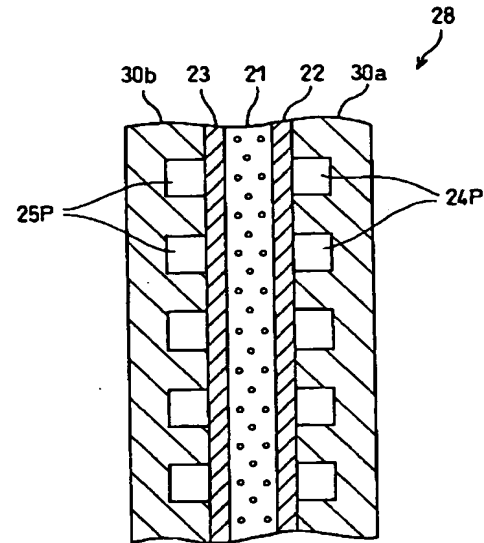
370…親水層

(5) 100-138067 (P2000-ch 橋

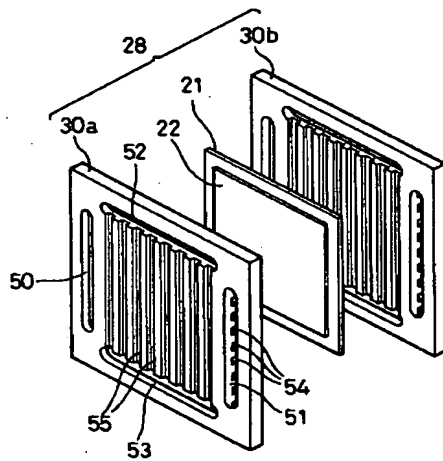
【図1】



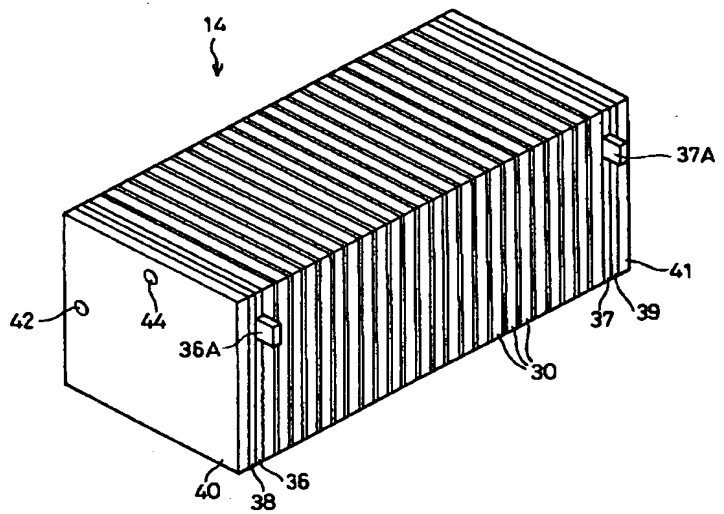
【図2】



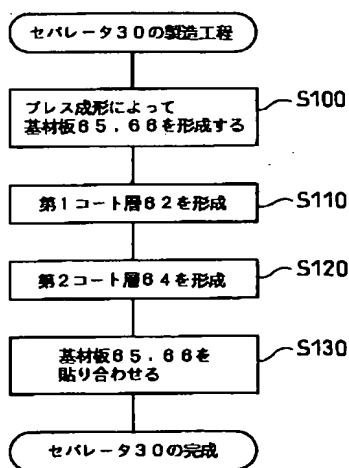
【図3】



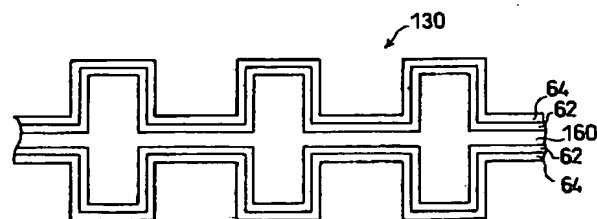
【図4】



【図5】

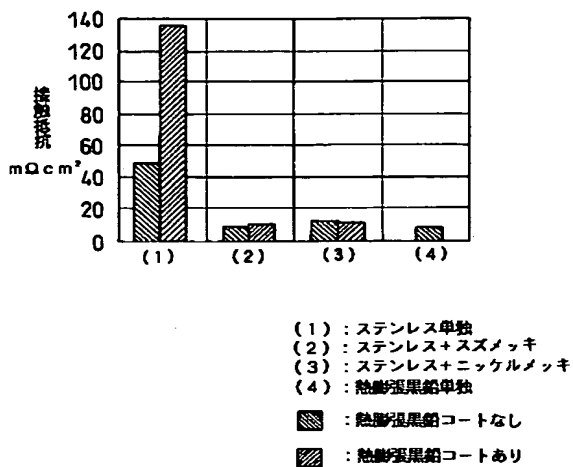


【図8】

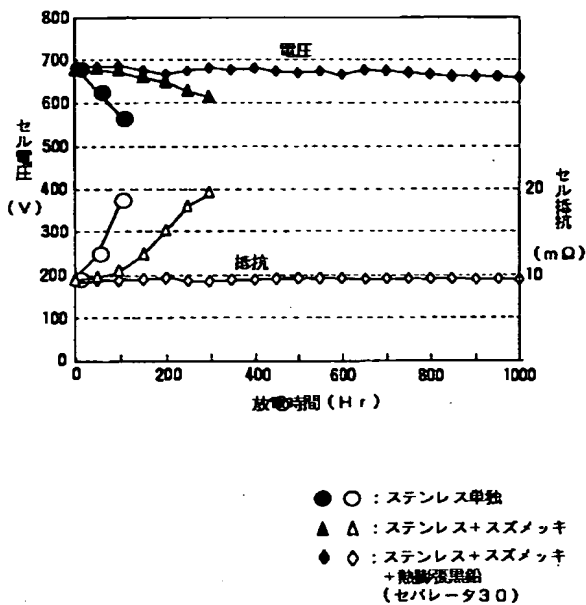


(6) 100-138067 (P2000-p! 丕僑

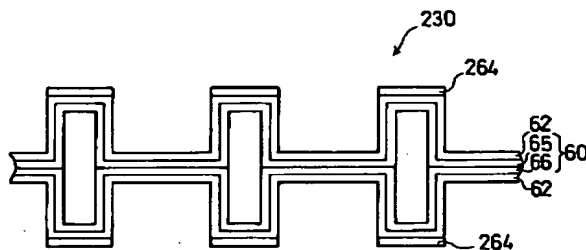
【図6】



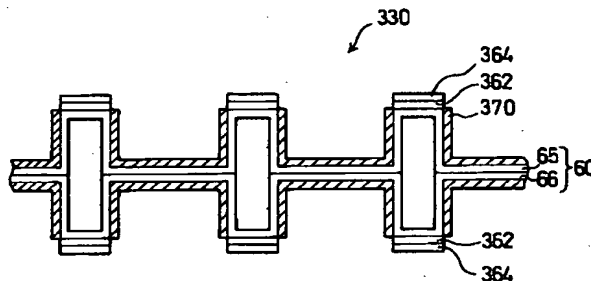
【図7】



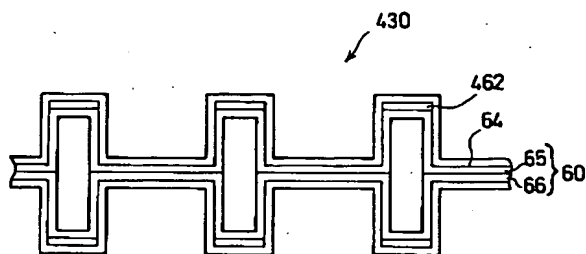
【図9】



【図10】



【図11】



フロントページの続き

(72)発明者 野々部 康宏
 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(72)発明者 山根 啓二
 山口県下松市東豊井1296番地 東洋鋼鈑株式会社技術研究所内

(註 7) 100-138067 (P2000-D■) 僑

Fターム(参考) 5H026 AA06 BB04 CC03 CX04 EE02
EE05 HH03